

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-133511

(43) 公開日 平成7年(1995)5月23日

技術表示箇所

(51) Int. Cl.

D 0 1 F 8/12

A 6 1 F 13/54

A 4 7 L 13/16

識別記号

庁内整理番号

Z 7199-3B

F I

A

A 4 1 B 13/02

A 6 1 F 13/18

E

3 1 0 Z

審査請求 未請求 請求項の数 3 OL (全 5 頁) 最終頁に続く

translation attached

(21) 出願番号

特願平5-281225

(22) 出願日

平成5年(1993)11月10日

(71) 出願人 000003160

東洋紡績株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号

(72) 発明者 北村 守

滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡績株式会社総合研究所内

(54) 【発明の名称】 生分解性複合繊維及びそれを用いた不織布

(57) 【要約】

【目的】 本発明は、自然環境下で放置すると徐々に生分解され最終的に消失するため、環境破壊の心配のない耐熱性の良い生分解性の良い生分解性複合繊維及び不織布を提供する。

【構成】 ポリ乳酸及び/又は、ポリ乳酸を主体とする融点120℃以上の熱可塑性樹脂(a)と、該熱可塑性樹脂(a)より融点が30℃以上低く、融点が90℃以上である熱可塑性樹脂(b)よりなり、芯成分が熱可塑性樹脂(a)、鞘成分が熱可塑性樹脂(b)である芯鞘型または並列型複合繊維であることを特徴とする生分解性複合繊維及びその不織布。

(c)1996 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.  
Biodegradable conjugate fibres and their nonwoven fabric - comprise thermoplastic resin as core contg. polylactic acid and/or polymer and thermoplastic resin as sheath

Patent Assignee: (TOYM) TOYOCO KK  
Number of Patents: 001  
Number of Countries: 001

Patent Family:  
CC Number Kind Date Week  
JP 7133511 A 950523 9529 (Basic)

Priority Data (CC No Data): JP 93281225 (931110)  
Abstract (Basic): JP 07133511 A

Fibre is of sheath-core or parallel arrangement type, and consists of a thermoplastic resin (A) as core component, which consists of poly-lactic acid and/or polymer consisting mainly of such acid and having m.pt. 120deg.C and a thermoplastic resin (B) as sheath component having m.pt. lower by 30deg.C than that of (A) and is 90deg or, pref. 100deg.C. (B) consists mainly of polylactic acid. Also claimed is a biodegradable nonwoven fabric prepd. by using the above conjugate fibre.

ADVANTAGE - The conjugate fibre and nonwoven fabric have good bio-degradability and heat resistance.

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリ乳酸及び／又は、ポリ乳酸を主体とする融点120℃以上の熱可塑性樹脂(a)と、該熱可塑性樹脂(a)より融点が30℃以上低く、融点が90℃以上である熱可塑性樹脂(b)よりなり、芯成分が熱可塑性樹脂(a)、鞘成分が熱可塑性樹脂(b)である芯鞘型または並列型複合繊維であることを特徴とする生分解性複合繊維。

【請求項2】 前記熱可塑性樹脂(b)が、ポリ乳酸を主体とする熱可塑性樹脂である請求項1記載の生分解性複合繊維。

【請求項3】 請求項1又は、請求項2の生分解性複合繊維を用いた生分解性不織布。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、生分解性不織布や生分解性熱接着性繊維として、有用な生分解性複合繊維及びそれを用いた不織布に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、農業、土木、漁業用途に用いられる産業資材繊維や生理用ナプキン、おむつ等の衛生材料やおしぼり、ワイピングクロス等の生活資材に使用されている繊維には、ポリエステル、ポリオレフィン、ポリアミド等の合成繊維が用いられている。これらの繊維は、使用後自然界に放置されると分解されにくい為、いろいろな問題を生じている。従って、使用後これらの産業資材、衛生材料、生活資材等は土中に埋められたり、焼却する事が必要となる。しかし、土中に埋められると生分解性が低いため、その土地の利用方法には制限がある。このような問題を解決するには、自然界で分解される素材を用いることが考えられる。

【0003】生分解性ポリマーとしては、セルロース、セルロース誘導体、キチン、キト酸等の多糖類、タンパク質、微生物により作られるポリ3-ヒドロキシブチレートや3-ヒドロキシシブチレート及び3-ヒドロキシバリラートの共重合体、ポリグリコリド、ポリラクチド、ポリカプロラクトン等の脂肪族ポリエステルが知られている。

【0004】主に使用されるセルロース系のコットン、再生セルロースは安価であるが熱可塑性でないためバインダーを必要とし、バインダー繊維としてポリオレフィン、ポリエステル繊維等を用いると、これらの繊維は、分解されにくい問題となる。

【0005】微生物により作られるポリ3-ヒドロキシブチレートや3-ヒドロキシシブチレート及び3-ヒドロキシバリラートの共重合体は、高価であり用途が限定されるという問題があった。

【0006】ポリカプロラクトンは、比較的安価な生分解性ポリマーであるが、融点が約60℃と低いため、水

(2)

特開平7-133511

2

ることができないという問題がある。又、60℃という温度は、自然界において夏期であれば流通段階で起こり得る温度であり耐熱性という点で問題があった。

【0007】安価な素材としてポリエチレンに澱粉を混合した素材が検討されているが、生分解性において満足いくものでなく、均一な機械特性の繊維を得ることができない。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】従来技術においては、比較的安価で且つ実用耐熱性及び強度を持ち、微生物により速やかに完全に分解される熱可塑性生分解性繊維がなく実用性のある成分分解性不織布を得ることができなかった。本発明は、このような事情に鑑み、比較的安価で且つ実用耐熱性及び強度を持ち、微生物により完全に分解される熱可塑性生分解性複合繊維及びそれを用いた不織布を提供するものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、比較的安価で且つ実用耐熱性及び強度を持ち、微生物により完全に分解される熱可塑性生分解性複合繊維について鋭意研究した結果、ポリ乳酸及び／又は、ポリ乳酸を主体とする熱可塑性繊維を芯鞘型または並列型複合繊維にすることにより上記問題を解決するにいたった。即ち、本発明は、ポリ乳酸及び／又は、ポリ乳酸を主体とする融点120℃以上の熱可塑性樹脂(a)と、該熱可塑性樹脂(a)より融点が30℃以上低く融点が90℃以上である熱可塑性樹脂(b)よりなり、芯成分が熱可塑性樹脂(a)、鞘成分が熱可塑性樹脂(b)である芯鞘型または並列型複合繊維であることを特徴とする生分解性複合繊維、また、それを用いた不織布である。

【0010】以下本発明について詳細に説明する。本発明において用いられるポリ乳酸及び／又は、ポリ乳酸を主体とする熱可塑性樹脂の粘度平均分子量は5000以上であり、好ましくは $10^4$ から $10^6$ のものである。5000未満では繊維として十分な強度が得られず、 $10^6$ をこえると紡糸時高粘度となり製糸性が劣り良くない。

【0011】ポリ乳酸の製造方法としては乳酸の脱水縮合、または乳酸の環状エステルの開環重合により得ることができる。ポリ乳酸を主体とする熱可塑性繊維としては、乳酸にε-カプロラクトン等の環状ラクトン類、α-ヒドロキシ酸、α-ヒドロキシイソ酸、α-ヒドロキシ吉草酸等のα-オキシ酸類、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール等のグリコール類、コハク酸、セバチン酸等のジカルボン酸類、ラウリン酸、ステアリン酸等の脂肪族カルボン酸類が一種又は二種以上共重合されたものを用いることができる。共重合する事により融点をコントロールすることができる。

【0012】本発明の生分解性複合繊維は、ポリ乳酸及

可塑性樹脂(a)と、該熱可塑性樹脂(a)より融点が30℃以上低く、融点が90℃以上である熱可塑性樹脂(b)よりなり、芯成分が熱可塑性樹脂(a)、鞘成分が熱可塑性樹脂(b)である芯鞘型または並列型複合繊維である。複合繊維により不織布を作り熱接着し強度を維持するためには、熱可塑性繊維(a)の融点は、熱可塑性樹脂(b)の融点より、30℃以上高いことが必要である。また、不織布加工する際、ある程度の耐熱性が要求される。通常、水流交絡後乾燥工程が必要となり、この場合、乾燥温度が100℃程度でないと乾燥効率が悪くなる。また、流通における製品の熱安定性を考慮すると夏期80℃程度の所に保管されることがある。熱可塑性樹脂(b)としては、90℃以上好ましくは100℃以上の融点を必要とする。熱可塑性樹脂(b)の融点が90℃未満であると不織布の熱安定性が得られない。熱可塑性樹脂(b)は、生分解性樹脂であれば、特に限定されるものではなくジカルボン酸及びジオールよりなるポリエステル、ポリグリコール酸等の脂肪族ポリエステル及び/又はそれらを主とする共重合体を用いることができる。

【0013】本発明の複合繊維は、常法により溶融紡糸し、延伸することにより製造することができる。溶融紡糸の温度は、複合繊維の組成や分子量により異なるが140～230℃とすることが好ましい。溶融紡糸された糸糸は、水冷または空冷後一旦巻取った後、または巻取らずに1段または2段以上の熱延伸または冷延伸する事ができる。延伸倍率は、引張強度2.0g/d以上とするためには1.5倍以上にすることが必要である。本発明の複合繊維において、芯鞘複合比及び並列型複合比は、10/90～90/10であり好ましくは30/70～70/30である。本発明の生分解性複合繊維は、長繊維、短繊維のいずれでも良く、使用目的により適時選定できる。

【0014】本発明の生分解性複合繊維は、カットする前に機械的撚縮加工を加えることができる。機械的撚縮加工としては、押込加熱ギア法、スタフィングボックス法等を使用することができる。撚縮加工方法は、限定するものではなく公知の方法を用いることができる。カードによりウェブを形成する際、開繊分散性を改善する事ができる。撚縮数は、5～50コ/25mm好ましくは10～30コ/25mm付与し、カット長10～80mm好ましくは20～60mmに切断する。この場合、撚縮数が5コ/25mmを越えると均一な開繊が得られない。また、撚縮率は5%以上で有るのが良く好ましくは8%以上である。撚縮率が5%未満であると、カードにかけたとき均一なウェブが得られず疎密部分が発生して良くない。

【0015】また、抄紙法により不織布を作る際に用いる生分解性複合短繊維は、繊維径0.5～5.0d好ましくは1.0～3.0dであり、カット長1～25mm

好ましくは3～15mmである。繊維径が0.5dより小さく、カット長が1mmより小さいときは抄紙が困難であり、繊維径が5dより大きく、25mmより長くても抄紙により均一な不織布を得る事が困難となり好ましくない。

【0016】生分解性複合繊維には、カード通過性、帯電防止性、集束性、抄紙時の分散性を考慮して、ラウリルホスフェートカリウム塩等のアニオン系界面活性剤、四級アンモニウム塩等のカチオン系界面活性剤、脂肪族高級アルコールや高級脂肪酸のエチレンオキサイド付加物等のノニオン系界面活性剤、ポリエチレングリコール、ポリエチレングリコール・ポリプロピレングリコールブロック共重合体等のポリアルキレングリコール、ジメチルポリシロキサン、ポリエーテル変性シリコーンオイル、高級アルコキシ変性シリコーンオイル等のシリコーンオイル類を一種又は二種以上付与することができる。

【0017】本発明の生分解性複合繊維を用いた不織布には、ニードルパンチ、高速噴流法等により三次元交絡する事ができる。三次元交絡を実施することにより、不織布の強力及び耐摩耗性を向上させることができる。

【0018】本発明の生分解性複合繊維による不織布は、加熱エンボスロールにより部分的に熱圧着し、強力及び耐摩耗性を向上させることができる。接着方法は、限定するものではなく公知の方法を用いる事ができる。熱圧着部の面積は、5～50%、好ましくは8～30%である。熱圧着部が5%未満では、不織布に十分な強力及び耐摩耗性を与えることができず、50%より大きくなると風合いが硬くなり、オムツ、生理用ナプキン、ワイピングクロス等の用途には適さない。

【0019】本発明における生分解性複合繊維には、ポリカプロラクトン等の他の脂肪族ポリエステル、ポリビニールアルコール、ポリアルキレングリコール、ポリアミノ酸等のポリマー、タルク、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、塩化カルシウム等の無機物、デンアン、タンパク質、食品添加物、酸化防止剤等を一種又は二種以上適量混合することができ、機械特性、生分解特性等を種々変化させることができる。

【0020】

【実施例】以下実施例をあげて本発明をさらに説明する。実施例における引張強度は、JIS L1015に準じ測定した。撚縮数及び撚縮度は、JIS L1015に準じ測定した。融点は、DSCまたは熱板融点測定機により測定した。熱風乾燥時の収縮率は、乾燥前に、縦20cm×横20cmのサンプルを取り乾燥後縦及び横各々3箇所測定し、数1により求めた。生分解性については、得られた繊維を土壌中に埋設し、3カ月後繊維を取り出し分解状態を目視にて評価した。形状が失われている場合、生分解性良好とした。風合いは、良好、普通、悪いの3段階で評価した。

【0021】

5

(4)

特開平7-133511

6

$$Y = [(A1 + A2 + A3 + B1 - B2 - B3) \times \text{【数1】}] \times 100$$

【0022】但し、Y：乾燥収縮率、A1、A2、A3：乾燥後の縦方向長さ、B1、B2、B3：乾燥後の横方向長さである。

【0023】実施例1

粘度平均分子量約8万のポリ乳酸を芯成分、粘度平均分子量約5万の乳酸・ε-カプロラクタン共重合体（モル比 乳酸/ε-カプロラクタン=95/5）を鞘成分とし、芯/鞘複合比率を50/50とし、紡糸温度185℃で直径0.3mmの紡糸孔を32個有する紡糸ノズルから紡速800m/minで溶融紡糸した。未延伸糸を一旦巻取った後80℃で2.5倍に延伸し単糸線度1.8dの繊維を得た。また、延伸後単糸線度1.8dの繊維を70℃に加温した押込ギア式捲縮加工機に導入して捲縮を与えた後油剤を付与し、51mmにカットしカード用の短繊維を得た。その短繊維をランダムウェッパにより目付け50g/m<sup>2</sup>のウェブとした後、水流交絡処理し100℃で熱風乾燥し不織布を得た（実施例1）。それらの物性を表1に示す。

【0024】比較例1

乳酸・ε-カプロラクタン共重合体（モル比 乳酸/ε-カプロラクタン=95/5）粘度平均分子量6万のポリ乳酸を紡糸温度140℃で直径0.3mmの紡糸孔を32個有する紡糸ノズルから紡速800m/minで溶融紡糸した。未延伸糸を一旦巻取った後70℃で2.2倍に延伸し単糸線度2.0dの繊維を得た。延伸後単糸線度2.0dの繊維を70℃に加温した押込ギア式捲縮加工機に導入して捲縮を与えた後油剤を付与し、51mmにカットしカード用の短繊維を得た。その短繊維をランダムウェッパにより目付け50g/m<sup>2</sup>のウェブとした後、水流交絡処理し100℃で熱風乾燥し不織布を得た（比較例1）。それらの物性を表1に示す。

【0025】比較例2

乳酸・ε-カプロラクタン共重合体（モル比 乳酸/ε-カプロラクタン=95/5）粘度平均分子量6万のポリ

※リ乳酸を芯成分、乳酸・ε-カプロラクタン共重合体（モル比 乳酸/ε-カプロラクタン=95/20）粘度平均分子量5万のポリ乳酸を芯成分として、芯/鞘複合比率を50/50とし、紡糸温度140℃で直径0.3mmの紡糸孔を32個有する紡糸ノズルから紡速600m/minで溶融紡糸した。未延伸糸を一旦巻取った後60℃で3.2倍に延伸し単糸線度2.2dの繊維を得た。延伸後単糸線度2.2dの繊維を60℃に加温した押込ギア式捲縮加工機に導入して捲縮を与えた後油剤を付与し、51mmにカットしカード用の短繊維を得た。その短繊維をランダムウェッパにより目付け50g/m<sup>2</sup>のウェブとした後、水流交絡処理し100℃で熱風乾燥し不織布を得た（比較例2）。それらの物性を表1に示す。

【0026】従来例1

ポリプロピレン（MI=60、230℃、2.13kg/g）を芯成分、ポリエチレン（MI=60、160℃、2.13kg/g）鞘成分とし、紡糸温度180℃で直径0.3mmの紡糸孔を32個有する紡糸ノズルから紡速600m/minで溶融紡糸した。未延伸糸を一旦巻取った後60℃で3.6倍に延伸し単糸線度2.6dの繊維を得た。延伸後単糸線度2.6dの繊維を60℃に加温した押込ギア式捲縮加工機に導入して捲縮を与えた後油剤を付与し、51mmにカットしカード用の短繊維を得た。その短繊維をランダムウェッパにより目付け50g/m<sup>2</sup>のウェブとした後、水流交絡処理し100℃で熱風乾燥し不織布を得た（比較例2）。それらの物性を表1に示す。

【0027】実施例1及び比較例1、2、3で得られた物性値、熱収縮率及び生分解性の評価結果を表1に示す。

【0028】

【表1】

		実施例1	比較例1	比較例2	従来例1
強度 (g/d)		3.5	2.2	2.0	3.2
融点 (°C)	芯成分	179.8 (DSC)	131.2 (DSC)	130.8 (DSC)	168.2 (DSC)
	鞘成分	130.8 (DSC)	-	83.5 (熱板式)	134.5 (DSC)
捲縮率 (コ/25mm)		18.2	18.6	17.0	17.8
捲縮率 (%)		12.8	10.5	11.6	12.6
縮長さ (mm)		51	51	51	51
乾熱収縮率 (%)		3.6	38.5	37.5	5.2
生分解性		良好	良好	良好	悪い
臭合い		良好	悪い	悪い	良好

【0029】表1より本発明の生分解性複合繊維が優れた生分解性と良好な物性を有し、耐熱性にも優れている事が解る。

【0030】

【発明の効果】本発明の生分解性複合繊維は、優れた生分解性と良好な機械物性を有し、耐熱性、熱融着性が良\*

\*好である。また、本発明の生分解性複合繊維を用いた不織布は、使い捨ておむつ、生理用ナプキンの表面シートやワイピングクロス等の生活資材、農業資材、土木資材、衣料資材に好適であり自然界において完全生分解性を有する。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

A61F 13/15  
D01D 5/34  
D04H 1/42  
1/54

識別記号

庁内整理番号

FI

ZAB T 7199-3B  
A 7199-3B

技術表示箇所



(19) Japanese Patent Office (JP) (11) Laid-open patent application

(12) Laid Open Patent Gazette (A) 7-133511

(43) Laid Open 23 May 1995

---

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	Code	PO Ref. Number	FI	Technical designation
D 01 F	8/12	Z	7199-3B	
A 61 F	13/54			
A 47 L	13/16	A		
		A 41 B	13/02	E
		A 61 F	13/18	310 Z

Request for examination not requested

Number of claims 3 OL

(Total 5 pages)

continued on the last page

(21) Application No. 5-281225

(22) Filing Date

10 November 1993

(71) Applicant

000003160

Toyobo Boseki KK [Toyobo]

2-2-8 Doshimahama, Kita-ku, Osaka-shi,  
Osaka-fu

(72) Inventor

M. Kitamura

Toyobo Research Laboratories, 2-1-1  
Katada-ku, Otsu-shi, Shiga-ken

(54) [Title of the invention]

Biodegradable composite fibers and nonwoven fabric  
using them

(57) [Abstract]

[Purpose] The present invention offers biodegradable composite fibers and nonwoven fabrics which have good heat-resistance and do not give rise to concern about harm to the environment because when left in a natural environment they are gradually biodegraded and finally disappear.

[Constitution] Biodegradable composite fibers which are characterized in that they are composite fibers of the parallel type or the sheath-core type made from (a) polylactate and/or a thermoplastic resin of a melting point of  $\geq 120^{\circ}\text{C}$  in which polylactate is the major component, and (b) a thermoplastic resin which has a melting point of  $\geq 90^{\circ}\text{C}$ , the melting point being  $\geq 30^{\circ}\text{C}$  lower than the said thermoplastic resin (a), with the core component being thermoplastic resin (a) and the sheath component being thermoplastic resin (b), and nonwoven fabric thereof.



-[Claims]

[Claim 1] Biodegradable composite fibers which are characterized in that they are composite fibers of the parallel type or the sheath-core type made from (a) polylactate and/or a thermoplastic resin of a melting point of  $\geq 120^{\circ}\text{C}$  in which polylactate is the major component, and (b) a thermoplastic resin which has a melting point of  $\geq 90^{\circ}\text{C}$ , the melting point being  $\geq 30^{\circ}\text{C}$  lower than the said thermoplastic resin (a), with the core component being thermoplastic resin (a) and the sheath component being thermoplastic resin (b).

[Claim 2] Biodegradable composite fibers according to Claim 1 in which the aforementioned thermoplastic fibers (b) are thermoplastic fibers in which polylactate is a major component.

[Claim 3] Biodegradable nonwoven fabric in which biodegradable composite fibers of Claim 1 or Claim 2 are used.

[Explanation of the invention]

[0001]

[Field of industrial application] The present invention relates to biodegradable composite fibers useful as biodegradable nonwoven fabric and biodegradable hot-melt adhesive fibers, and to nonwoven fabrics using them.

[0002]

[Prior art] Artificial fibers such as polyesters, polyolefins and polyamides, etc., have been used as prior fibers employed as industrial fibers for agricultural,

civil engineering and fishing uses, sanitary materials such as sanitary towels and diapers, etc., and domestic materials such as hand towels and wiping cloths, etc. These fibers produce problems if they are left in the natural environment after being used because they are not readily degraded. Therefore, these industrial materials, sanitary materials and domestic materials, etc., need to be buried or incinerated. However, burial limits the uses of the ground used because they are not readily biodegradable. The use of materials which are degraded naturally could be considered as a way of solving such problems.

[0003] Known biodegradable polymers include polysaccharides such as cellulose, cellulose derivatives, chitin and chitosan, etc., proteins and aliphatic polyesters such as poly(3-hydroxybutyrate) and copolymers of 3-hydroxybutyrate and 3-hydroxy[barirate], polyglycolide, polylactide and polycaprolactone, etc.

[0004] The cotton and regenerated cellulose cellulosic fibers mainly employed are cheap, but binders are needed because they are not thermoplastic, and if polyolefin fibers or polyester fibers, etc., are used as binder fibers these fibers become a problem because they are not readily degraded.

[0005] Poly(3-hydroxybutyrate) and 3-hydroxybutyrate/3-hydroxy[barirate] copolymers have the problem that their high price limits their use.

[0006] Polycaprolactone is a comparatively cheap biodegradable polymer, but has the problem that when

-making nonwoven fabric by wet methods the drying temperature cannot be raised because the melting point is only ca. 60°C. Moreover, there are problems as far as heat-resistance is concerned, since 60°C is a temperature that could occur during summer at the distribution stage.

[0007] Materials made by mixing starch with polyethylene have been investigated as cheap materials, but they are not satisfactory as far as biodegradability is concerned, and cannot give fibers with uniform mechanical properties.

[0008]

[Problem which the invention is intended to solve] In the prior art there are no thermoplastic biodegradable fibers which are comparatively cheap but have a practical level of heat-resistance and can be rapidly and completely degraded by microorganisms, and it cannot give practically useful biodegradable nonwoven fabrics. The present invention is a response to this situation, and offers thermoplastic biodegradable composite fibers which are comparatively cheap, and also have a practical level of heat resistance and strength and are completely degraded by microorganisms.

[0009]

[Means for solving the problem] As the result of concerted research on thermoplastic biodegradable composite fibers which are comparatively cheap, and also have a practical level of heat resistance and strength and are completely degraded by microorganisms, the present inventor has discovered that the problem above is solved

by making polylactate and/or thermoplastic fibers consisting primarily of polylactate in a core-and-sheath type or parallel type composite fibers. Thus, the present invention relates to biodegradable composite fibers which are characterized in that they are composite fibers of the parallel type or the sheath-core type made from (a) polylactate and/or a thermoplastic resin of a melting point of  $\geq 120^{\circ}\text{C}$  in which polylactate is the major component and (b) a thermoplastic resin which has a melting point of  $\geq 90^{\circ}\text{C}$ , the melting point being  $\geq 30^{\circ}\text{C}$  lower than the said thermoplastic resin (a), with the core component being thermoplastic resin (a) and the sheath component being thermoplastic resin (b), and nonwoven fabrics using these.

[0010] The present invention is explained in detail below. The viscosity average molecular weight of the polylactate and/or thermoplastic resin in which polylactate is the major component is  $\geq 5000$ , and is preferably  $10^4$  to  $10^6$ . Fibers with adequate strength cannot be obtained when it is less than 5000, and more than  $10^6$  is undesirable because spinning viscosity becomes high and it is difficult to make filaments.

[0011] Polylactate can be obtained by a method such as condensation of lactic acid with the elimination of water, or ring-opening polymerization of a cyclic lactate ester. As thermoplastic fibers in which polylactate is the major component, copolymers of lactic acid with one or two or more cyclic lactones such as  $\epsilon$ -caprolactone, etc.,  $\alpha$ -hydroxy acids such as  $\alpha$ -hydroxybutyric acid,  $\alpha$ -

hydroxyisobutyric acid and  $\alpha$ -hydroxyvaleric acid, etc., glycols such as ethylene glycol and 1,4-butanediol, etc., dicarboxylic acids such as succinic acid and sebacic acid, and/or aliphatic carboxylic acids such as lauric acid and stearic acid, etc., can be used. By copolymerization it is possible to regulate the melting point.

[0012] Biodegradable composite fibers of the present invention are composite fibers of the parallel type or the sheath-core type made from (a) polylactate and/or a thermoplastic resin of a melting point of  $\geq 120^{\circ}\text{C}$  in which polylactate is the major component and (b) a thermoplastic resin which has a melting point of  $\geq 90^{\circ}\text{C}$ , the melting point being  $\geq 30^{\circ}\text{C}$  lower than the said thermoplastic resin (a), with the core component being thermoplastic resin (a) and the sheath component being thermoplastic resin (b). In order to maintain strength after hot adhesion when making nonwoven fabric from the composite fiber the melting point of thermoplastic fibers (a) needs to be  $\geq 30^{\circ}\text{C}$  higher than the melting point of thermoplastic resin (b). Some degree of heat resistance is also needed when processing the nonwoven fabric. Ordinarily a drying process is needed after wet fiber criss-crossing, and in this case drying efficiency is poor unless the drying temperature is of the order of  $100^{\circ}\text{C}$ . In addition, when one considers the heat-stability of the product during distribution there is the chance that during summer it may be stored at the order of  $80^{\circ}\text{C}$ . Thermoplastic resin (b) needs to have a melting point of  $\geq 90^{\circ}\text{C}$ , and preferably  $\geq 100^{\circ}\text{C}$ . If the melting point of

thermoplastic resin (b) is less than 90°C the resulting nonwoven fabric will not be heat-stable. There are no specific restrictions as to thermoplastic resin (b) other than the fact that it is a biodegradable resin, and aliphatic polyesters such as polyesters from dicarboxylic acids and diols, and polyglycolate, etc., and/or copolymers in which these are a major component, can be used.

[0013] Composite fibers of the present invention can be made by melt spinning and drawing using ordinary methods. The temperature of melt spinning will differ depending on the composition and molecular weight of the composite fibers, but 140-230°C is preferred. The yarn from melt spinning can be water-cooled or air-cooled, and then hot drawn or cold drawn in 1 stage or 2 or more stages without previously winding or after temporary winding. The draw rate needs to be at least 1.5 times in order to give a tensile strength of  $\geq 2.0$  g/d. In the composite fibers of the present invention the core/sheath ratio in the composite or parallel composite ratio is 10/90 to 90/10, and preferably 30/70 to 70/30. The biodegradable composite fibers of the present invention can be long fibers or short fibers, with the appropriate choice depending on the purpose for which they are to be employed.

[0014] Biodegradable composite fibers of the present invention can be mechanically crimped before cutting. The hot squeezing gear method or stuffer box method can be employed for mechanical crimping. There are

no restrictions as to the crimping method, and a known method can be used. Separation and dispersion of the fibers when forming a web can be improved by carding. The number of crimps can be 5-50/25 mm, and is preferably 10-30/mm, and the cut length 10-80 mm, and preferably 20-60 mm. In this case uniform separation of fibers is not obtained if the crimp number exceeds 5/25 mm [sic]. The crimping rate can be  $\geq 5\%$ , and is preferably  $\geq 8\%$ . A crimping rate of less than 5% is undesirable because carding produces dense and sparse patches and does not give a uniform web.

[0015] Similarly, short biodegradable composite fibers used in making nonwoven fabric by wet matting have a fineness of 0.5-5.0 d, and preferably 1.0-3.0 d, and a cut length of 1-25 mm, and preferably 3-15 mm. Matting is difficult when the fibre is finer than 0.5 d and the cut length is smaller than 1 mm, and a fineness of more than 5 d and cut length longer than 25 mm are undesirable because it becomes difficult to obtain a uniform nonwoven fabric by matting.

[0016] In the light of the ease with which the fibers pass through the card, preventing static electricity, convergence properties and dispersion during matting, one or more anionic surfactants such as potassium lauryl phosphate, etc., cationic surfactants such as tertiary ammonium salts, non-ionic surfactants such as ethylene oxide addition compounds of higher fatty acids and aliphatic higher alcohols, etc., polyalkylene glycols such as polyethylene glycol and polyethylene glycol 1/-

-polypropylene glycol block copolymers, etc., dimethyl polysiloxane and silicone oils such as polyether-modified silicone oil and higher-alkoxy-modified silicone, etc., can be added.

[0017] Nonwoven fabric using biodegradable composite fibers of the present invention can also be made by needle punching or three-dimensional criss-crossing by means of high-speed fluid jets, etc. By carrying out three-dimensional criss-crossing the strength and wear-resistance of the nonwoven fabric can be raised.

[0018] The strength and wear-resistance of nonwoven fabric using biodegradable composite fibers of the present invention can be further raised by hot press bonding by means of heated embossing rollers. There are no particular restrictions as to the bonding method, and a known method can be used. The hot-press bonded surface area is 5-50%, and preferably 8-30%. The nonwoven fabric cannot be given adequate strength and wear-resistance when the hot-press bonded area is less than 5%, and when it is greater than 50% the feel becomes hard and the fabric is unsuitable for end uses such as diapers, sanitary towels and wiping cloths, etc.

[0019] Within the present invention one or two or more polymers such as other aliphatic polyesters such as polycaprolactone, etc., and poly(vinyl alcohol), polyalkylene glycols, etc., organic substances such as talc, calcium carbonate, calcium sulfate and calcium chloride, etc., starch, proteins, food additives and antioxidants can be mixed with the biodegradable composite fibers in



order to change mechanical properties and characteristics of biodegradability, etc.

[0020]

[Embodiments] The present invention is explained below by citing embodiments. Tensile strength in the embodiments was determined according to JIS L1015. Crimp number and degree of crimp were determined according to JIS L1015. Melting point was determined by DSC or hot-plate melting point determination apparatus. Contraction on hot-air drying was found by Equation 1 on the basis of determinations at 3 points along both the length and 3 points along the width after drying on samples measuring 20 cm long and 20 cm across before drying. Biodegradability was evaluated by burying the resulting fibers in the soil, removing the fibers 3 months later and assessing the degree of decomposition visually. Biodegradability was taken to be satisfactory when the shape was lost. Feel was assessed by 3 stages - good, ordinary, poor.

[0021]

[Equation 1]

$$Y = [(A1 + A2 + A3 + B1 + B2 + B3)/(6 \times 20)] \times 100$$

[0022] Where Y : dry heat contraction; A1, A2 and A3 : length after drying; B1, B2 and B3 : width after drying.

[0023] Embodiment 1

A sheath component of polylactate of viscosity average molecular weight ca. 80,000 and a sheath component of lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactane copolymer (molar ratio lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactane = 95/5) of viscosity average

molecular weight ca. 50,000 were hot-melt spun at a spinning temperature of 185°C and a spinning speed of 800 m/min from a spinneret having 32 nozzles 0.3 mm in diameter, to give a core/sheath ratio of 50/50 in the composite. After temporarily taking up the undrawn filaments they were drawn 2.5 times at 80°C to obtain fibers of a unit filament thickness of 1.8 d. The drawn 1.8-d fibers were led to a squeezing gear type crimper warmed to 70°C and crimped, then oiled, and cut to 51 mm to obtain short fibers for carding. The short fibers were formed by a random webber into a web of weight per unit area of 50 g/m<sup>2</sup>, treated by wet criss-crossing, and dried at 100°C to obtain a nonwoven fabric (Embodiment 1). The properties of this are shown in Table 1.

[0024] Comparison Example 1

A lactic acid/ε-caprolactone copolymer (molar ratio lactic acid/ε-caprolactone = 95/5) polylactate of viscosity average molecular weight 60,000 was hot-melt spun at a spinning temperature of 140°C and a spinning speed of 800 m/min from a spinneret having 32 nozzles 0.3 mm in diameter. After temporarily taking up the undrawn filaments they were drawn 2.2 times at 70°C to obtain fibers of a unit filament thickness of 2.0 d. The drawn 2.0-d fibers were led to a squeezing gear type crimper warmed to 70°C and crimped, then oiled, and cut to 51 mm to obtain short fibers for carding. The short fibers were formed by a random webber into a web of weight per unit area of 50 g/m<sup>2</sup>, treated by wet criss-crossing, and dried at 100°C to obtain a nonwoven fabric (Comparison Example

-1). The properties of this are shown in Table 1.

[0025] Comparison Example 2

A sheath component of lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactan copolymer (molar ratio lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactone = 95/5) polylactate of viscosity average molecular weight 60,000 and a core [sic] component of lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactane copolymer (molar ratio lactic acid/ $\epsilon$ -caprolactone = 95/20) polylactate of viscosity average molecular weight 50,000 were hot-melt spun at a spinning temperature of 140°C and a spinning speed of 600 m/min from a spinneret having 32 nozzles 0.3 mm in diameter. After temporarily taking up the undrawn filaments they were drawn 3.2 times at 60°C to obtain fibers of a unit filament thickness of 2.2 d. The drawn 2.2-d fibers were led to a squeezing gear type crimper warmed to 60°C and crimped, then oiled, and cut to 51 mm to obtain short fibers for carding. The short fibers were formed by a random webber into a web of weight per unit area of 50 g/m<sup>2</sup>, treated by wet criss-crossing, and dried at 100°C to obtain a nonwoven fabric (Comparison Example 2). The properties of this are shown in Table 1.

[0026] Prior Example 1

A core component of polypropylene (MI = 60, 230°C, 2.13 kg) and sheath component of polyethylene (MI = 60, 160°C, 2.13 kg) were hot-melt spun at a spinning temperature of 180°C and a spinning speed of 600 m/min from a spinneret having 32 nozzles 0.3 mm in diameter. After temporarily taking up the undrawn filaments they were drawn 3.6 times at 60°C to obtain fibers of a unit

filament thickness of 2.6 d. The drawn 2.6-d fibers were led to a squeezing gear type crimper warmed to 60°C and crimped, then oiled, and cut to 51 mm to obtain short fibers for carding. The short fibers were formed by a random webber into a web of weight per unit area of 50 g/m<sup>2</sup>, treated by wet criss-crossing, and dried at 100°C to obtain a nonwoven fabric (Comparison Example 2 [sic]). The properties of this are shown in Table 1.

[0027] The values for physical properties, heat contraction and results of evaluation of biodegradability obtained in Embodiment 1 and Comparison Examples 1, 2 and 3 [sic] are shown in Table 1.

[0028]

[Table 1]

		Embodiment 1	Comparison 1	Comparison 2	Prior 1
Strength (g/d)		3.5	2.2	2.0	3.2
Melting point (°C)	Core	179.8 (DSC)	131.2 (DSC)	130.8 (DSC)	168.2 (DSC)
	Sheath	130.8 (DSC)	-	83.5 (hot plate)	134.5 (DSC)
Crimp number (/25 mm)		18.2	16.6	17.0	17.8
Crimp rate (%)		12.8	10.5	11.6	12.6
Fiber length (mm)		51	51	51	51
Heat contraction (%)		3.6	38.5	37.5	5.2
Biodegradability		good	good	good	poor
Feel		good	poor	poor	good

[0029] From Table 1 it is evident that the biodegradable composite fibers of the present invention have excellent biodegradability and good physical properties and are also outstandingly heat-resistant.

[0030]

[Benefits of the invention] Biodegradable composite fibers of the present invention have excellent biodegradability and good mechanical properties, and have good heat-resistance and hot-melt adhesion. In addition, nonwoven fabric using biodegradable fiber of the present invention is suitable for disposable diapers, sanitary napkins and household items like wiping cloths, etc., and for agricultural materials, civil engineering materials and clothing materials, and is completely biodegradable in the natural environment.

---

continued from the front page

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	Code	PO Ref. Number	FI	Technical designation
A 61 F 13/15				
D 01 D 5/34		7199-3B		
D 04 H 1/42	ZAB T	7199-3B		
1/54	A	7199-3B		

# Translator's Report/Comments

Your ref: W209mm

Your order of (date):

In translating the above text we have noted the following apparent errors/unclear passages which we have corrected or amended:

Page/para/line*	Comment
Claim No.	
[0003]	The Japanese reads 3-hydroxy "barirêto (misprint perhaps for 3-hydroxyvalerate - "barerêto").
[0009]	Misprint in the original - "shûbunkaisei" = "mainly degradable ?" instead of "seibunkaisei" = "biodegradable".
[0023]	Within the embodiments "kapurorakuton" = "caprolactone" and "kapurorakutan" seem to be used interchangeably apparently for caprolactone. The latter has been "translated" "caprolactane" to reflect the difference in spelling in the original. Caprolactam would usually be transliterated "kapurorakutamu" in Japanese.
page 7	Please note that the figures "3" and "8" were hard to differentiate. Please double-check.

\* This identification refers to the source text. Please note that the first paragraph is taken to be, where relevant, the end portion of a paragraph starting on the preceding page. Where the paragraph is stated, the line number relates to the particular paragraph. Where the paragraph is stated, the line number refers to the page margin line number.